

DOCKET NO.: 274435 US

10/540569
JC17 Rec'd PCT/PTO 24 JUN 2005

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Tatsuya EGAWA, et al.
SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION
FILED: HERewith
INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP03/16597
INTERNATIONAL FILING DATE: December 24, 2003
FOR: LUBE BASE OIL AND LUBRICATING OIL COMPOSITION

**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**

Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<u>COUNTRY</u>	<u>APPLICATION NO</u>	<u>DAY/MONTH/YEAR</u>
Japan	2002-372397	24 December 2002

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP03/16597.

Respectfully submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number

22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

10/540569

PCT/JP03/16597

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

24.12.03

24 JUN 2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年12月24日

REC'D 19 FEB 2004

出願番号
Application Number: 特願2002-372397

WIPO

PCT

[ST. 10/C]: [JP2002-372397]

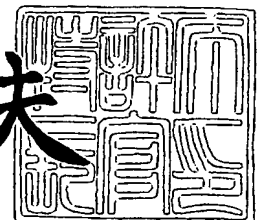
出願人
Applicant(s): 出光興産株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 2月 5日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 IK11402

【提出日】 平成14年12月24日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C01M171/00

【発明の名称】 潤滑油基油及び潤滑油組成物

【請求項の数】 8

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

 【氏名】 江川 達哉

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県袖ヶ浦市上泉 1 2 8 0 番地

 【氏名】 坪内 俊之

【発明者】

 【住所又は居所】 千葉県市原市姉崎海岸 2 4 番地 4

 【氏名】 芳本 雅博

【特許出願人】

 【識別番号】 000183646

 【氏名又は名称】 出光興産株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100078732

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 大谷 保

【選任した代理人】

 【識別番号】 100081765

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 東平 正道

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003171

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0000937

【包括委任状番号】 0000761

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 潤滑油基油及び潤滑油組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 シリコンオイルを除く潤滑油基油であって、40℃における動粘度が $12\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下であり、Noack試験（250℃、1時間）による蒸発減量が30質量%以下及び／又は引火点が200℃以上であり、かつアニリン点が60℃以上である潤滑油基油。

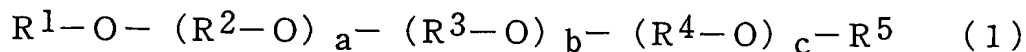
【請求項 2】 前記アニリン点が80℃以上である請求項 1 に記載の潤滑油基油。

【請求項 3】 前記引火点が220℃以上である請求項 1 又は 2 に記載の潤滑油基油。

【請求項 4】 前記40℃における動粘度が $10\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下である請求項 1～3 のいずれかに記載の潤滑油基油。

【請求項 5】 前記潤滑油基油がエーテル化合物を含有するものである請求項 1～4 のいずれかに記載の潤滑油基油。

【請求項 6】 前記エーテル化合物が、下記一般式（1）で表される化合物又はその混合物である請求項 5 に記載の潤滑油基油。



（式中、 R^1 及び R^5 は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～24のアルキル基、フェニル基、又は炭素数7～24のアルキルアリール基を示し、 R^2 、 R^3 及び R^4 は、それぞれ独立に、炭素数2～18のアルキレン基を示し、 a 、 b 及び c は、それぞれ独立に、平均値で0～8の数を示し、 $a \sim c$ の合計は0～8である。（ R^2-O ）、（ R^3-O ）及び（ R^4-O ）は、構成単位ごとに同一でも異なってもよい。）

【請求項 7】 前記潤滑油基油が、さらに炭化水素化合物を含有するものである請求項 1～6 のいずれかに記載の潤滑油基油。

【請求項 8】 請求項 1～7 のいずれかに記載の潤滑油基油に、酸化防止剤、粘度指数向上剤、清浄分散剤、摩擦低減剤、金属不活性化剤、流動点降下剤、耐摩耗剤、消泡剤及び極圧剤の中から選ばれる少なくとも一種の添加剤を配合

してなる潤滑油組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、潤滑油基油及び潤滑油組成物に関し、特に、低粘度でありながら、蒸発量が少なく、有機材との適合性に優れた潤滑油基油及び潤滑油組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、内燃機関用エンジンはより省燃費型へと進み、その要求に対応するためエンジン油の粘度はさらに低粘度化している。その低粘度化に対して、従来から低粘度油と高粘度油の配合の変更で対応してきたが、低粘度油はエンジン内の高温により蒸発し易いため、使用するに従って排ガスとともに排出され、次第に粘度が上昇する結果、燃費が悪化する。このような従来のオイルの欠点を解決するため、新たに蒸発性の指標としてNoack試験（ノアック試験）が導入され、その結果、低蒸発性の要求を満足する低粘度基油の利用が高まってきた。

【0003】

低粘度で蒸発量が少ない潤滑油組成物としてエステル系のものが知られているが、極性が高く有機材への悪影響（膨潤）の問題がある。例えば、エンジンオイルに使用した場合、シール材などに使用されているゴムを膨潤するという問題があり、また、流体軸受け油、含油軸受け油などに使用した場合、プラスチック材料への悪影響があるという問題があった。また、添加剤の溶解性が悪いという問題もある。

シリコンオイルも低粘度で蒸発量が少ない潤滑油基油であるが、潤滑性が劣り、高価であるという問題がある。また、ポリ α -オレフィンも、低粘度で低い蒸発性の基油として知られているが、粘度グレード4 mm² / s（100℃）のものは、低粘度という点で十分ではなく、粘度グレード2 mm² / s（100℃）のものは、低蒸発性という点で十分ではなかった。

さらに、特許文献1には、エーテル結合を有する化合物を含有し、粘度指数及

び流動点を特定範囲に限定した潤滑油基油が開示されているが、さらなる省燃費性を満足させるため、さらに低粘度で蒸発量が少ない潤滑油基油が求められていた。

【0004】

【特許文献1】

特開平10-324883号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、前記の課題を解決するためになされたもので、低粘度でありながら、蒸発量が少なく、有機材との適合性に優れた潤滑油基油及び潤滑油組成物を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、動粘度、蒸発減量及び／又は引火点、及びアニリン点を特定範囲に限定することにより、前記の課題を解決することを見出し本発明を完成したものである。

すなわち、本発明は、シリコンオイルを除く潤滑油基油であって、40℃における動粘度が $12\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下であり、Noack試験（250℃、1時間）による蒸発減量が30質量%以下及び／又は引火点が200℃以上であり、かつアニリン点が60℃以上である潤滑油基油を提供するものである。

また、本発明は、前記潤滑油基油に、酸化防止剤、粘度指数向上剤、清浄分散剤、摩擦低減剤、金属不活性化剤、流動点降下剤、耐摩耗剤、消泡剤及び極圧剤の中から選ばれる少なくとも一種の添加剤を配合してなる潤滑油組成物を提供するものである。

【0007】

【発明の実施の形態】

本発明の潤滑油基油は、少なくとも下記①～③の条件を満たすことが必要である。

まず、本発明の潤滑油基油は、①40℃における動粘度が $12\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下

であることを必須とし、さらには $11 \text{ mm}^2 / \text{s}$ 以下であると好ましく、 $10 \text{ mm}^2 / \text{s}$ 以下であると特に好ましい。この動粘度が、 $12 \text{ mm}^2 / \text{s}$ を超えると、潤滑油基油の粘度が高くなり、十分な省燃費効果が得られない。

次に、本発明の潤滑油基油は、②Noack試験（ 250°C 、1時間）による蒸発減量が30質量%以下であること及び／又は引火点が第四石油類となる 200°C 以上であることを必須とする。Noack試験に関しては、さらにその蒸発減量が、25質量%以下であると好ましく、15質量%以下であると特に好ましい。この蒸発減量が30質量%を超えると、基油の使用中に蒸発して減少する量が多くなり、寿命が短くなる。また、引火点に関しては、さらに 210°C 以上であると好ましく、 220°C 以上であると特に好ましい。引火点が 200°C 未満であると基油の使用中に蒸発して減少する量が多くなり、寿命が短くなる。

なお、Noack試験は、酸化分解などの影響を受け実際の蒸発性を反映しない場合がある。これは酸化防止剤の添加などで、抑制できる場合もあるが、本発明では、Noack試験と引火点とを組み合わせることによって基油の蒸発性を特定するものである。

【0008】

また、本発明の潤滑油基油は、③アニリン点が 60°C 以上であることを必須とし、さらには 80°C 以上であると好ましく、 $90\sim 110^\circ\text{C}$ であると特に好ましい。アニリン点が 60°C 未満であると、装置に使用されるプラスチックやゴム等の有機材を膨潤させてしまうなど、有機材への適合性が劣るからである。また、アニリン点が 110°C を超えると、有機材が収縮してしまうことがある。

また、本発明の潤滑油基油は、JIS K 2283により測定した粘度指数が100以上であると好ましく、120以上であるさらに好ましい。

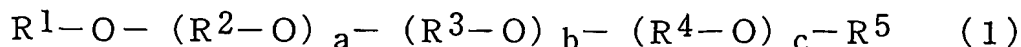
さらに、本発明の潤滑油基油は、JIS K 2265により測定した流動点が -15°C 以下であると好ましく、 -25°C 以下であるさらに好ましい。

【0009】

以上のような条件を満たす本発明の潤滑油基油は、炭素、水素及び酸素からなる化合物（以下、「含酸素化合物」という）を含むことが好ましい。具体例には、エーテル、エステル又はカーボネート構造を有するものが好ましく、特にエー

テル化合物が好ましい。

また、エーテル化合物において、下記一般式(1)で表される化合物又はその混合物が好ましい。



式中、 R^1 及び R^5 は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～24のアルキル基、フェニル基、又は炭素数7～24のアルキルアリール基を示し、 R^2 、 R^3 及び R^4 は、それぞれ独立に、炭素数2～18のアルキレン基を示し、 a 、 b 及び c は、それぞれ独立に、平均値で0～8（好ましくは、0～5）の数を示し、 $a \sim c$ の合計は0～8（好ましくは、0～5）である。 (R^2-O) 、 (R^3-O) 及び (R^4-O) は、構成単位ごとに同一でも異なってもよい。

【0010】

前記 R^1 及び R^5 の示すアルキル基としては、それぞれ直鎖状、分岐状、環状のいずれであってもよく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基、3, 5, 5-トリメチルヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、3, 7-ジメチルオクチル基、ノニル基、2-ペンチルノニル基、デシル基、2-オクチルウンデカニル基、ドデシル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などが挙げられ、特に、2-エチルヘキシル基、3, 5, 5-トリメチルヘキシル基、オクチル基、3, 7-ジメチルオクチル基、ノニル基、2-ペンチルノニル基、デシル基、2-オクチルウンデカニル基が好ましい。

【0011】

前記 R^1 及び R^5 の示すアルキルアリール基としては、それぞれアルキルフェニル基やアルキルナフチル基などが挙げられ、アルキル部位としては、前記した具体例が挙げられ、特に、オクチル基、デシル基、ドデシル基が好ましい。

前記 R^2 、 R^3 及び R^4 の示すアルキレン基としては、それぞれ直鎖状、分岐状、環状のいずれであってもよく、例えば、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、デシレン基、ドデシレン基、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基などが挙げられ、特に、エチレン基、プロピレン基、ブチレン基、ヘキシレン基、ノニレン基、デシレン基が好ましい。

【0012】

本発明の潤滑油基油は、前記含酸素化合物に加え、種々の炭化水素化合物を含有することができる。この場合でも前記①～③の条件を満たすことが必要である。

前記含酸素化合物と混合する炭化水素化合物としては、本発明の潤滑油基油の効果を損なわないものであれば特に限定されず、例えば、鉱油（80ニュートラル鉱油等）、ポリ α -オレフィン（粘度グレード4 mm² / s 又は8 mm² / s（100℃）等）、エチレン-プロピレン共重合体、アルキルベンゼン（プロピルベンゼン、ブチルベンゼン等）などが挙げられ、特に、ポリ α -オレフィンが好ましい。

ただし、本発明の潤滑油基油は、シリコンオイルは含まない。シリコンオイルは、上記の条件を満たしたとしても、潤滑性が劣り、高価であるためである。

【0013】

また、本発明の潤滑油基油は、エンジン油の用途を始め、その用途に応じて、各種の添加剤を配合して潤滑油組成物として使用することができる。すなわち、本発明の潤滑油基油は、それ自体でも潤滑油として使用可能であるが、目的に応じて下記の添加剤を配合して潤滑油組成物とし、それぞれの用途に適合した潤滑油として使用すると好ましい。

【0014】

添加剤としては、公知のものなど各種のものが使用可能であり、例えば、酸化防止剤として、アルキル化ジフェニルアミン、フェニル- α -ナフチルアミンなどのアミン系化合物、2, 6-ジ-*t*-ブチルフェノール、4, 4'-メチレンビス-(2, 6-ジ-*t*-ブチルフェノール)などのフェノール系化合物；粘度指数向上剤として、ポリメチルメタクリレート系、ポリイソブチレン系、エチレン-プロピレン共重合体系、スチレン-イソブレン共重合体系、スチレン-ブタジエン水添共重合体系；清浄分散剤として、アルカリ土類金属スルホネート、アルカリ土類金属フェネート、アルカリ土類金属サリチレート、アルカリ土類金属ホスホネート等の金属系清浄剤、並びにアルケニルコハク酸イミド、ベンジルア

ミン、アルキルポリアミン、アルケニルコハク酸エステル等の無灰系分散剤；摩擦低減剤としては、脂肪族アルコール、脂肪酸、脂肪酸エステル、脂肪族アミン、脂肪酸アミン塩、脂肪酸アミド；金属不活性化剤として、ベンゾトリアゾール、チアジアゾール、アルケニルコハク酸エステル；流動点降下剤として、ポリアルキルメタクリレート、ポリアルキルスチレン；耐摩耗剤としては、MoDTP、MoDTCなどの有機モリブデン化合物、ZnDTPなどの有機亜鉛化合物、アルキルメルカプチルボレートなどの有機ホウ素化合物、グラファイト、二硫化モリブデン、硫化アンチモン、ホウ素化合物、ポリテトラフルオロエチレンなどの固体潤滑剤系耐摩耗剤；消泡剤として、ジメチルポリシロキサン、ポリアクリレート；極圧剤として、硫化油脂、ジフェニルスルフィド、メチルトリクロロステアレート、塩素化ナフタレンなどを挙げることができる。

【0015】

本発明の潤滑油基油の用途としては、例えば、内燃機関用を始め、油圧作動油、自動変速機油、手動変速機油、緩衝器油、歯車油、流体軸受油、転がり軸受油、含油軸受油、摺動面油、冷凍機油などが挙げられる。

【0016】

【実施例】

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

なお、潤滑油基油単体の諸特性は、下記の方法に従って測定した。

(1) 動粘度

JIS K 2283に準拠して測定した（40℃及び100℃）。

(2) 粘度指数

JIS K 2283に準拠して測定した。

(3) 流動点

JIS K 2269に準拠して測定した。

(4) アニリン点

JIS K 2256に準拠して測定した。

(5) 蒸発減量

ASTM D 5800 (Noack試験: 250℃、1時間) に準拠して測定した。

(6) 引火点

JIS K 2265 に準拠して測定した。

【0017】

製造例 1

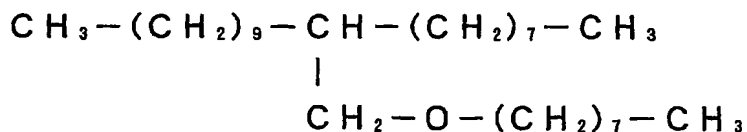
2 リットルガラス製フラスコに、2-オクチル-1-ドデカノール 300 g、1-ブロモオクタン 300 g、テトラブチルアンモニウムブロマイド 30 g、水酸化ナトリウム水溶液 500 g (水酸化ナトリウム 150 g を水 350 g に溶解したもの) を入れ、50℃で20時間攪拌し反応させた。

反応終了後、反応混合物を分液ロートに移し、水相をろ別し、残った有機相を水 500 ミリリットルで5回洗浄した。有機相から減圧蒸留により、得られた化合物を分離した。

得られた化合物について、ガスクロマトグラフィー分析装置 (分析装置: 日立 263-70 型、カラム: ジーエルサイエンス株式会社製 OV-1 パックドカラム (2 m)) にて、99%以上の純度 (ピーク面積より算出) を確認し、核磁気共鳴装置 (^1H -NMR, ^{13}C -NMR: 日本電子株式会社製 GSX 400) にて、以下の構造のエーテル化合物であることを確認した。測定した ^1H -NMR スペクトル及び ^{13}C -NMR スペクトルを、それぞれ図 1 及び図 2 に示す。

【0018】

【化1】



【0019】

実施例 1

製造例 1 で得られた化合物について、上記 (1) ~ (6) の特性を測定した。その結果を表 1 に示す。

【0020】

比較例 1

セバシン酸ジ(2-エチルヘキシル)エステル(東京化成工業(株)製)について、上記(1)～(6)の特性を測定した。その結果を表1に示す。

比較例 2

アジピン酸ジ(2-エチルヘキシル)エステル(東京化成工業(株)製)について、上記(1)～(6)の特性を測定した。その結果を表1に示す。

比較例 3

アジピン酸ジ(2-エチルヘキシル)エステル(東京化成工業(株)製) 50質量%とポリ α -オレフィン(商品名:HITEC164、ETHYL社製) 50質量%との混合物について、上記(1)～(6)の特性を測定した。その結果を表1に示す。

比較例 4

ポリ α -オレフィン(商品名:HITEC164、ETHYL社製)について、上記(1)～(6)の特性を測定した。その結果を表1に示す。

【0021】

【表1】

表 1

	動粘度(mm ² /s)		粘度指数	流動点	アニリン点	蒸発減量	引火点	密度
	40℃	100℃		(℃)	(℃)	(質量%)	(℃)	(g/cm ³)
実施例1	9.807	2.804	137	-37.5	90.7	24.7	228	0.8278
比較例1	11.600	3.200	149	-50以下	-20以下	-	215	-
比較例2	7.643	2.310	115	-50以下	-	40.9	-	0.9291
比較例3	10.790	2.909	122	-50以下	71.8	38.1	-	0.8695
比較例4	16.700	3.840	124	-50以下	120	11.8	213	-

【0022】

【発明の効果】

以上詳細に説明したように、本発明の潤滑油基油及び潤滑油組成物は、低粘度であるため省燃費性に優れ、蒸発量が少ないため寿命が長く、有機材との適合性にも優れており、内燃機関用エンジン油、軸受油を始めとする各種潤滑油として有用である。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 製造例 1 で製造した化合物の ^1H -NMR スペクトルを示す図である。

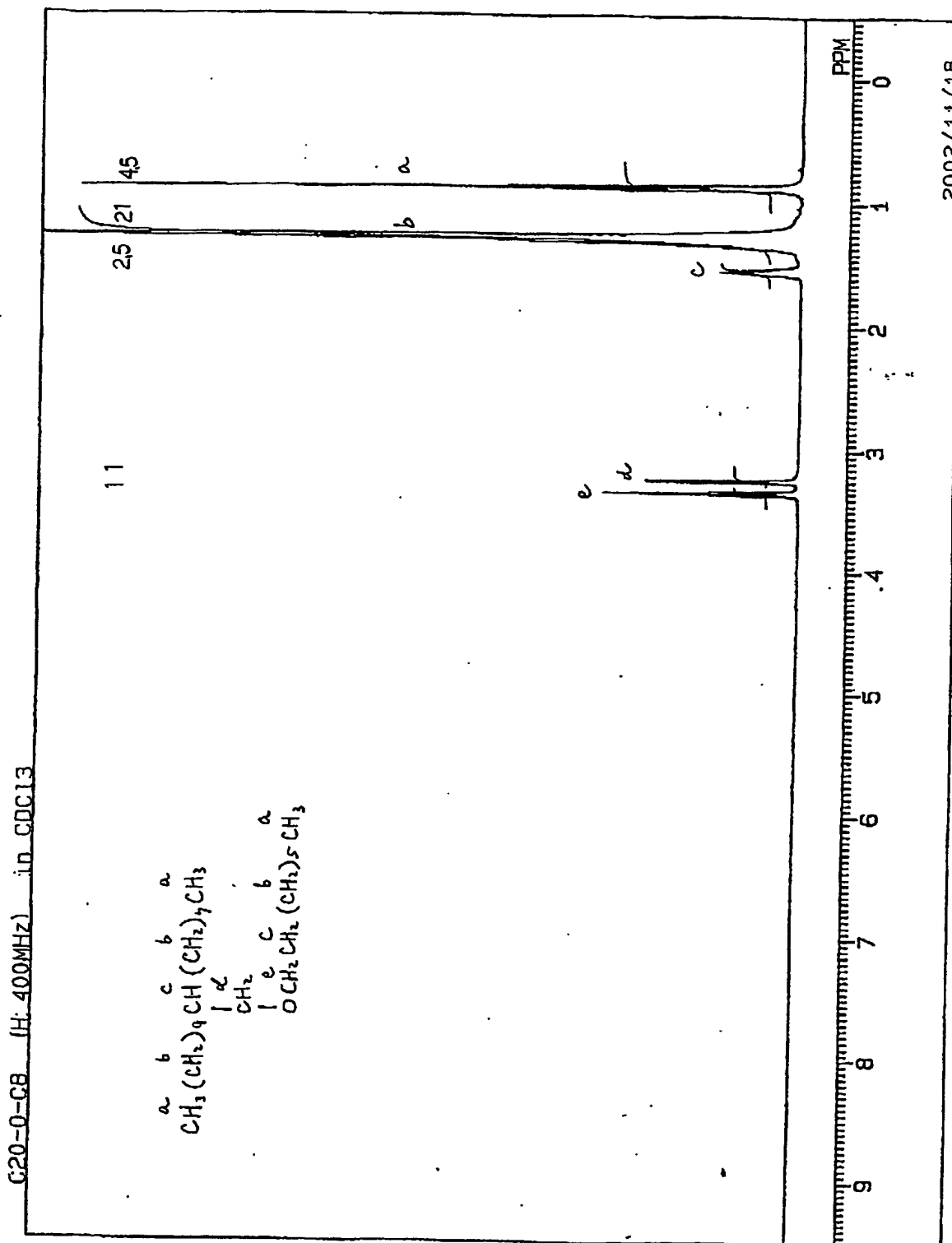
【図 2】 製造例 1 で製造した化合物の ^{13}C -NMR スペクトルを示す図である

。

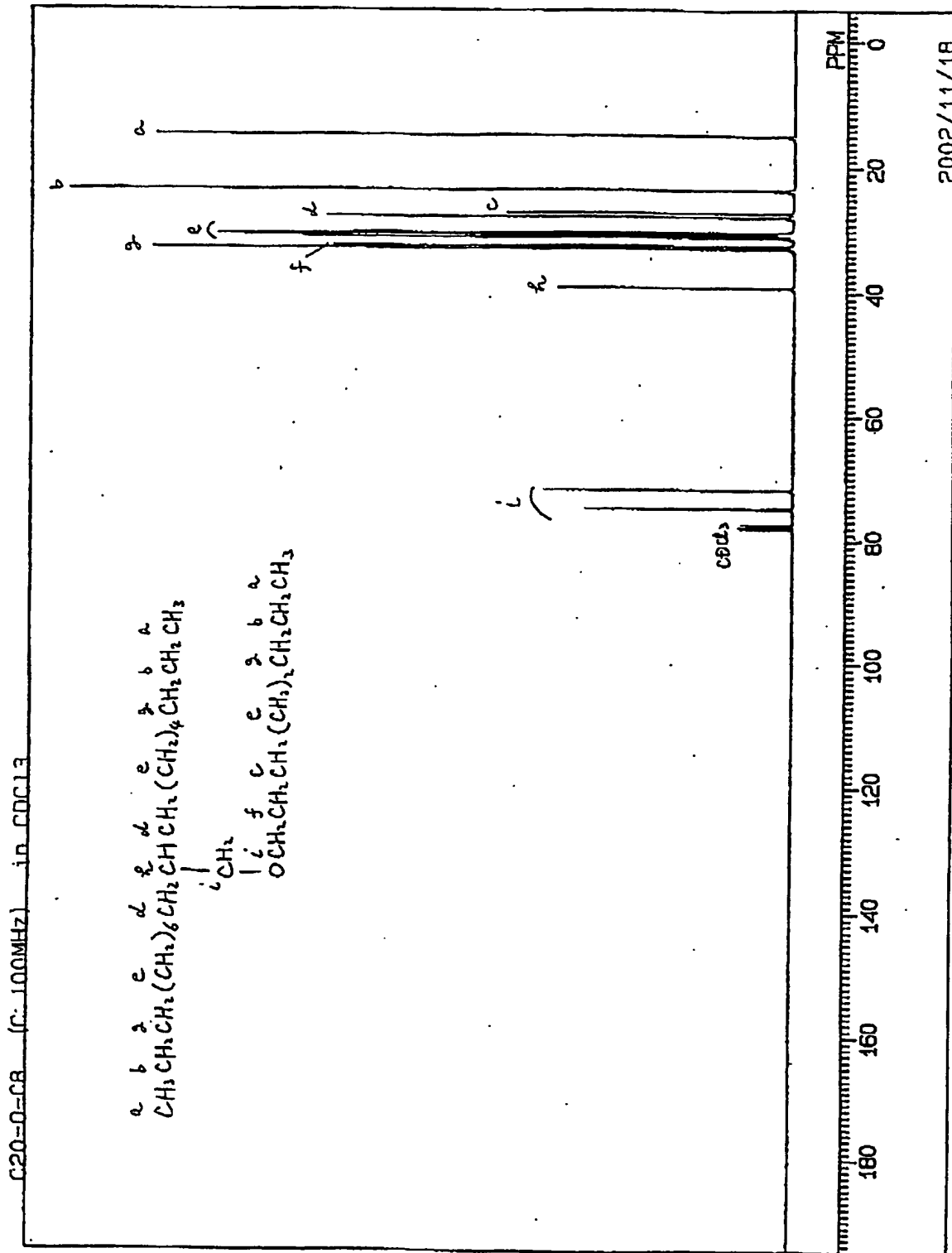
【書類名】

図面

【図 1】



【図 2】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 低粘度でありながら、蒸発量が少なく、有機材との適合性に優れた潤滑油基油及び潤滑油組成物を提供する。

【解決手段】 本発明は、シリコンオイルを除く潤滑油基油であって、40℃における動粘度が $12\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下であり、Noack試験（250℃、1時間）による蒸発減量が30質量%以下及び／又は引火点が200℃以上であり、かつアニリン点が60℃以上である潤滑油基油、前記潤滑油基油に、酸化防止剤、粘度指数向上剤、清浄分散剤、摩擦低減剤、金属不活性化剤、流動点降下剤、耐摩耗剤、消泡剤及び極圧剤の中から選ばれる少なくとも一種の添加剤を配合してなる潤滑油組成物を提供するものである。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 7 2 3 9 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 1 8 3 6 4 6]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号

氏 名

出光興産株式会社